

IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant(s): SAITO, Kazuo et al

Application No.:

Group:

Filed: July 6, 2001

Examiner:

For: FUEL CELL SEPARATOR, PROCESS FOR PRODUCTION THEREOF, AND  
POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL



L E T T E R

Assistant Commissioner for Patents  
Box Patent Application  
Washington, D.C. 20231

July 6, 2001  
0171-0763P

Sir:

Under the provisions of 35 USC 119 and 37 CFR 1.55(a), the applicant hereby claims the right of priority based on the following application(s):

<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Filed</u>
JAPAN	2000-204728	07/06/00

A certified copy of the above-noted application(s) is(are) attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to deposit Account No. 02-2448 for any additional fees required under 37 C.F.R. 1.16 or under 37 C.F.R. 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

BIRCH, STEWART, KOLASCH & BIRCH, LLP

By:

#36623  
GERALD M. MURPHY, JR.

Reg. No. 28,977

P. O. Box 747

Falls Church, Virginia 22040-0747

Attachment  
(703) 205-8000  
/tf

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

SAITO, et al  
7-6-01  
BSICB  
(703) 205-8000  
0171-6763P  
10F1  
8280

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

11000 U.S. PTO  
09/899107  
07/06/01

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2000年 7月 6日

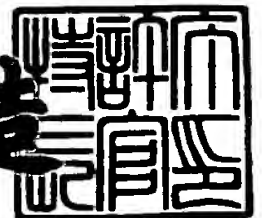
出 願 番 号  
Application Number: 特願2000-204728

出 願 人  
Applicant (s): 日清紡績株式会社

2001年 3月23日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3023931

【書類名】 特許願

【整理番号】 12324

【提出日】 平成12年 7月 6日

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県千葉市緑区大野台 1 - 2 - 3 日清紡績株式会社  
研究開発センター内

【氏名】 斎藤 一夫

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県千葉市緑区大野台 1 - 2 - 3 日清紡績株式会社  
研究開発センター内

【氏名】 萩原 敦

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県千葉市緑区大野台 1 - 2 - 3 日清紡績株式会社  
研究開発センター内

【氏名】 宮澤 篤史

【特許出願人】

【識別番号】 000004374

【氏名又は名称】 日清紡績株式会社

【代理人】

【識別番号】 100079304

【弁理士】

【氏名又は名称】 小島 隆司

【選任した代理人】

【識別番号】 100103595

【弁理士】

【氏名又は名称】 西川 裕子

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003207

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池セパレータ、その製造方法及び固体高分子型燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータの垂直方向断面における長軸方向の最大長さが  $50\ \mu\text{m}$  以上であり、かつ短軸方向の最大長さが  $30\ \mu\text{m}$  以上である導電性炭素粉末の総占有面積が垂直方向断面積に対して  $50\%$  以上であることを特徴とする燃料電池セパレータ。

【請求項 2】 導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記導電性炭素粉末  $100$  質量部に対して結合材を  $10\sim 50$  質量部添加すると共に、上記導電性炭素粉末として平均粒径  $100\sim 500\ \mu\text{m}$  の球状乃至は塊状グラファイトを用い形成してなることを特徴とする燃料電池セパレータ。

【請求項 3】 上記球状乃至は塊状グラファイトの嵩密度が  $0.6\ \text{g}/\text{ml}$  以上である請求項 2 記載の燃料電池セパレータ。

【請求項 4】 導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータの垂直方向断面における長軸方向の最大長さが  $50\ \mu\text{m}$  以上であり、かつ短軸方向の最大長さが  $30\ \mu\text{m}$  以上である導電性炭素粉末の総占有面積が垂直方向断面積に対して  $50\%$  以上である請求項 2 又は 3 記載の燃料電池セパレータ。

【請求項 5】 J I S H 0 6 0 2 に準拠して測定した固有抵抗が  $20\ \text{m}\Omega\cdot\text{cm}$  以下である請求項 1 乃至 4 のいずれか 1 項記載の燃料電池セパレータ。

【請求項 6】 導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータの製造方法において、上記導電性炭素粉末  $100$  質量部に対して結合材を  $10\sim 50$  質量部添加混合した混合物を用いて射出成形することを特徴とする燃料電

池セパレータの製造方法。

【請求項 7】 上記導電性炭素粉末として平均粒径 1 0 0 ~ 5 0 0  $\mu$  m であり、かつ高密度が 0 . 6 g / m l 以上の球状乃至は塊状グラファイトを用いる請求項 6 記載の燃料電池セパレータの製造方法。

【請求項 8】 固体高分子電解質膜を挟む一对の電極と、該電極を挟んでガス供給排出用流路を形成する一对のセパレータとから構成される単位セルを多数並設した構造を有する固体高分子型燃料電池において、上記燃料電池中の全セパレータの一部又は全部として請求項 1 乃至 5 のいずれか 1 項記載の燃料電池セパレータを用いたことを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池セパレータ、その製造方法及び固体高分子型燃料電池に関し、更に詳述すると、高弾性、高導電性、優れた成形性を有する燃料電池セパレータ及びその製造方法、この燃料電池セパレータを一部又は全部に用いた高いガスシール性と優れた耐衝撃性を有し、特に自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として好適な固体高分子型燃料電池に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】

燃料電池、特に固体高分子型燃料電池は、図 1 に示したように、左右両側面に複数個の凸部（リブ）1 a を備えた 2 枚の燃料電池セパレータ 1、1 と、これらセパレーター間に固体高分子電解質膜 2 と、ガス拡散電極 3 とを介在させてなる単電池（単位セル）を数十個～数百個並設してなる電池本体（セルスタック）から構成されている。

【 0 0 0 3 】

上記燃料電池セパレータ 1 は、図 2（A）、（B）に示したように、薄肉の板状体の左右両側面に複数個の凸部（リブ）1 a を突設し、片面又は両面にガス供給溝 4 を有する特異な形状を有しており、このセパレータの凸部 1 a と電極 3 との間で水素、酸素等の燃料ガスの供給排出用流路 4 を形成するため、燃料電池セ

パレータには高い弾性と優れた寸法精度を有することが要求されると共に、燃料電池セパレータ及び単位セル（燃料電池）には燃料ガスの漏れが生じない高いガスシール性を有すること、燃料電池に組み立て時のボルトとナットによる締め付けでセパレータに割れやヒビが生じないこと、特に自動車等の移動用電源として用いる場合には優れた耐衝撃性を有することが強く望まれている。

## 【 0 0 0 4 】

このため、（i）炭素質粉末 1 0 0 重量部に対し、熱硬化性樹脂を 1 0 ～ 1 0 0 重量部の割合で加えて均一に混練し、硬化して得られた固体高分子型燃料電池セパレータであって、上記炭素質粉末として最大粒子径  $125\mu\text{m}$  以下の黒鉛粉末を用いたものが提案されている（特開平 1 1 - 2 9 7 3 3 7 号公報）。また、（ii）数平均粒径で  $25\mu\text{m}$  以上、好ましくは  $25\mu\text{m} \sim 500\mu\text{m}$  の膨張黒鉛粒子を用いた燃料電池セパレータが提案されている（2 0 0 0 - 1 0 0 4 5 3 号公報）。

## 【 0 0 0 5 】

しかしながら、上記従来の燃料電池のセパレータは、高フィラー含有材料であるため、射出充填することが困難であり、特に、上記（i），（ii）ではグラファイトの粒径が小さいため、材料そのものの流動性が低下して射出成形時の成形性、機械的物性を十分満足することができないという問題がある。また、鱗片状グラファイトは、高密度が低いため射出成形機のスクリーン内で材料が空回りして成形不能となるという問題がある。更に、比較的大径の高密度の大きいグラファイトを用いても添加混練時又は射出成形時に崩れて小径となってしまうという問題がある。

## 【 0 0 0 6 】

一方、燃料電池は、単位セル当りから取り出せる電圧が低く、実用規模（～数 1 0 0 k W）の電池出力を得るためには、単位セルを数十個乃至数百個並設しなければならない。このため、部分的な厚みむらや歪みのない均一な形状の燃料電池セパレータを効率良く大量生産できることが切望されている。

## 【 0 0 0 7 】

しかしながら、従来のフェノール樹脂等の熱硬化性樹脂と黒鉛とを主成分とす

る燃料電池セパレータは、必要な導電性を付与するため黒鉛を多量に添加しているので流動性に欠け、射出成形を行うことは困難である。このため、燃料電池セパレータは、コンパウンドをセパレータ成形用金型内に投入し、150～160℃、14.7～29.4MPaで5～10分間熱圧成形することにより製造されているが、かかる圧縮成形法では成形時間が長くなり、低効率であると共に、大量生産には適さないものである。

#### 【0008】

本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、高弾性、高導電性、優れたガス不透過性を有する高品質な燃料電池セパレータ、この燃料電池セパレータを効率よく、大量生産することが可能な燃料電池セパレータの製造方法、及び燃料電池を組み立てる際の締め付けにより燃料電池セパレータにヒビや割れの発生がなく、高いガスシール性と優れた耐衝撃性を備えた固体高分子型燃料電池を提供することを目的とする。

#### 【0009】

##### 【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】

本発明者は、上記目的を達成するため鋭意検討を重ねた結果、成形された燃料電池セパレータ中に嵩密度の大きい導電性炭素粉末が多く存在することが成形性、機械的強度、導電性を高める上で効果的であることを知見した。

#### 【0010】

即ち、導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記導電性炭素粉末100質量部に対して結合材を10～50質量部添加すると共に、上記導電性炭素粉末として平均粒径100～500 $\mu$ mの球状乃至は塊状の嵩密度の大きいグラファイトを用いることにより、成形後の燃料電池セパレータの垂直方向断面における長軸方向の最大長さが50 $\mu$ m以上であり、かつ短軸方向の最大長さが30 $\mu$ m以上である導電性炭素粉末の総占有面積が垂直方向断面積に対して50%以上となり、高弾性かつ高い導電性、優れたガス不透過性を有する高品質な燃料電池セパレータが得られること、この燃料電池セパレータを一部又は全部に用いて燃料電池を組み立てる際に、ボルトとナットで締め付け



てもセパレータに割れやヒビが生じることがなく、高いガスシール性と優れた耐衝撃性を有し、自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として最適な固体高分子型燃料電池が得られることを見出し、本発明をなすに至った。

【 0 0 1 1 】

また、本発明によれば、導電性炭素粉末 1 0 0 質量部に対して結合材を 1 0 ～ 5 0 質量部添加混合した混合物を用いることにより、従来困難であった射出成形が可能となり、薄肉の板状体の片面又は両面にガス供給溝を有する特異な形状の燃料電池セパレータを効率よく、大量生産することが可能となり、製品の低コスト化を計ることができるものである。

【 0 0 1 2 】

従って、本発明は、下記の燃料電池セパレータ、その製造方法及び固体高分子型燃料電池を提供する。

請求項 1 :

導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータの垂直方向断面における長軸方向の最大長さが  $50\mu\text{m}$  以上であり、かつ短軸方向の最大長さが  $30\mu\text{m}$  以上である導電性炭素粉末の総占有面積が垂直方向断面積に対して 5 0 % 以上であることを特徴とする燃料電池セパレータ。

請求項 2 :

導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記導電性炭素粉末 1 0 0 質量部に対して結合材を 1 0 ～ 5 0 質量部添加すると共に、上記導電性炭素粉末として平均粒径  $100\sim500\mu\text{m}$  の球状乃至は塊状グラファイトを用い形成してなることを特徴とする燃料電池セパレータ。

請求項 3 :

上記球状乃至は塊状グラファイトの高密度が  $0.6\text{g}/\text{ml}$  以上である請求項 2 記載の燃料電池セパレータ。

請求項 4 :

導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータの垂直方向断面における長軸方向の最大長さが  $50\ \mu\text{m}$  以上であり、かつ短軸方向の最大長さが  $30\ \mu\text{m}$  以上である導電性炭素粉末の総占有面積が垂直方向断面積に対して  $50\%$  以上である請求項 2 又は 3 記載の燃料電池セパレータ。

請求項 5 :

J I S H 0 6 0 2 に準拠して測定した固有抵抗が  $20\ \text{m}\Omega \cdot \text{cm}$  以下である請求項 1 乃至 4 のいずれか 1 項記載の燃料電池セパレータ。

請求項 6 :

導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータの製造方法において、上記導電性炭素粉末  $100$  質量部に対して結合材を  $10 \sim 50$  質量部添加混合した混合物を用いて射出成形することを特徴とする燃料電池セパレータの製造方法。

請求項 7 :

上記導電性炭素粉末として平均粒径  $100 \sim 500\ \mu\text{m}$  であり、かつ嵩密度が  $0.6\ \text{g}/\text{ml}$  以上の球状乃至は塊状グラファイトを用いる請求項 6 記載の燃料電池セパレータの製造方法。

請求項 8 :

固体高分子電解質膜を挟む一対の電極と、該電極を挟んでガス供給排出用流路を形成する一対のセパレータとから構成される単位セルを多数並設した構造を有する固体高分子型燃料電池において、上記燃料電池中の全セパレータの一部又は全部として請求項 1 乃至 5 のいずれか 1 項記載の燃料電池セパレータを用いたことを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【 0 0 1 3 】

以下、本発明について更に詳しく説明する。

本発明の燃料電池セパレータは、導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有し、こ

の燃料電池セパレータの垂直方向断面における長軸方向の最大長さが $50\mu\text{m}$ 以上であり、かつ短軸方向の最大長さが $30\mu\text{m}$ 以上である導電性炭素粉末の総占有面積が垂直方向断面積に対して $50\%$ 以上であることを特徴とし、これにより機械的強度、導電性、ガス不透過性が向上するものである。

## 【0014】

この場合、燃料電池セパレータとしては、図2(A)，(B)に示したような長さ $120\text{mm}$ ×幅 $120\text{mm}$ ×厚み $2.3\text{mm}$ の片面又は両面にガス供給溝を有する平板状のセパレータを用い、この燃料電池セパレータの任意の垂直方向（厚さ方向）の断面をデジタルCCDカメラを取り付けた顕微鏡で観察した（カールツアイス株式会社製 アキシオスコープ2）。例えば参考写真1，2に示したようなデジタル写真（ $\times 200$ ）が得られ、写真中で白色に見える部分がグラファイト粒である。なお、倍率は $50\sim 500$ 倍、好ましくは $50\sim 200$ 倍である。

## 【0015】

得られたデジタル写真中において、不規則に並んでいる不定形状のグラファイト粒の大きさ及びその占有面積を求める。この場合、図3に示したように、長軸方向と短軸方向の最大となる長さを求め、長軸方向の最大長さが $50\mu\text{m}$ 以上であり、かつ短軸方向の最大長さが $30\mu\text{m}$ 以上であるグラファイトを選び出し、そのグラファイトの近似面積を（長軸方向最大長さ×短軸方向最大長さ）から求めることができる。なお、長軸方向最大長さは、グラファイト粒の中心を通過した長さでなくてもよく、最も長い線分を引きこれを長軸方向最大長さとすることができる。また長軸最大長さの線分と垂直な線のうち最も長い線分を短軸方向最大長さとすることができる。また、グラファイト粒中に穴（空孔）が存在しても全体として一つにまとまっている場合は1粒のグラファイトとした。更に非常に複雑な形状のグラファイト粒はいくつかに分割して面積を求めることもできる。

## 【0016】

具体的には、図3に示した垂直断面の概略図における、グラファイトの近似面積の総和 $S1$ は $(a1 \times b1) + (a2 \times b2) + (a3 \times b3) + (a4 \times b4) \dots$ から求めることができる。このグラファイトの総占有面積 $S1$ と垂直方向

断面積  $S_2$  (図 3 では  $x \times y = S_2$ ) とから、 $(S_1 / S_2) \times 100$  より垂直方向断面中のグラファイトの占有面積率を算出することができる。

## 【 0 0 1 7 】

このようにして垂直方向断面における長軸方向の最大長さが  $50 \mu\text{m}$  以上、好ましくは  $70 \mu\text{m}$  以上であり、かつ短軸方向の最大長さが  $30 \mu\text{m}$  以上、好ましくは  $50 \mu\text{m}$  以上であるグラファイトの占有面積率が  $50\%$  以上、好ましくは  $50 \sim 80\%$ 、より好ましくは  $55 \sim 75\%$ 、更に好ましくは  $60 \sim 75\%$  である。グラファイトの占有面積率が小さすぎると固有抵抗が大きくなり、燃料電池セパレータとしての物性を満足し得なくなる。一方、大きすぎると燃料電池セパレータの機械的強度の低下が著しくなる。

## 【 0 0 1 8 】

このような燃料電池セパレータは、(A) 導電性炭素粉末と (B) 結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形することにより得ることができる。

## 【 0 0 1 9 】

ここで、上記 (A) 成分の導電性炭素粉末としては、天然に産出したものであっても人工的に製造したものであってもよく、カーボンブラック、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、カーボンウイスキー、黒鉛などが挙げられ、これらの 1 種を単独で又は 2 種以上を組み合わせ用いることができる。これらの中でも、特に黒鉛が好ましい。

## 【 0 0 2 0 】

この場合、黒鉛としては、球状乃至は塊状グラファイトを用いる。鱗片状グラファイトでは成形体にフローマーク又はウェルドラインなどの成形不良が生じ易く、また、クラックを生じる場合があり、更に嵩密度が小さいため射出成形機のスクリーンが空回りして射出成形不能となる場合がある。この球状乃至は塊状グラファイトの J I S K 6 8 9 1 - 1 9 9 5 に準拠して測定した嵩密度は  $0.6 \text{ g/ml}$  以上、好ましくは  $0.7 \text{ g/ml}$  以上、より好ましくは  $0.7 \sim 1.2 \text{ g/ml}$ 、更に好ましくは  $0.7 \sim 1.0 \text{ g/ml}$  である。嵩密度が小さすぎると上述した不具合が生じて成形性が低下する場合がある。

## 【 0 0 2 1 】

導電性炭素粉末の平均粒径は100～500  $\mu\text{m}$ であり、好ましくは150～450  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは150～400  $\mu\text{m}$ である。導電性炭素粉末の平均粒径が小さすぎると組成物の流動性が低下し、射出成形時の充填が困難となり、導電性が低下する場合がある。一方、導電性炭素粉末の平均粒径が大きすぎると成形したセパレータの機械的強度が低下し、薄肉製品においてガス遮蔽性に問題が生じる場合がある。

## 【 0 0 2 2 】

上記（B）成分の結合材としては、特に制限されず、熱硬化性樹脂又は熱硬化性樹脂を用いることができる。熱硬化性樹脂としては、例えばレゾールタイプのフェノール樹脂、ノボラックタイプのフェノール樹脂に代表されるフェノール系樹脂、フルフリルアルコール樹脂、フルフリルアルコールフルフラール樹脂、フルフリルアルコールフェノール樹脂などのフラン系樹脂、ポリイミド樹脂、ポリカルボジイミド樹脂、ポリアクリロニトリル樹脂、ピレンーフェナントレン樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、エポキシ樹脂、ユリア樹脂、ジアリルフタレート樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、メラミン樹脂などが挙げられ、これらの1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

## 【 0 0 2 3 】

また、熱可塑性樹脂としては、アクリロニトリルブタジエンスチレン（ABS）樹脂、アクリロニトリルスチレン共重合体（AS）、耐衝撃性ポリスチレン（HIPS）、ポリスチレン（PS）、メチルメタクリレートブタジエンスチレン共重合体（MBS）、メタクリル酸メチルースチレン共重合体（MS）、アクリロニトリルエチレンプロピレンゴムスチレン共重合体（AES）、アクリロニトリルスチレンアクリレート（AAS）等のスチレン系樹脂、ポリエチレン（PE）、ポリプロピレン（PP）、ポリブテンー1、エチレン酢酸ビニル共重合体（EVA）、エチレンビニルアルコール共重合体（EVOH）等のポリオレフィン系樹脂、ポリアミド樹脂、熱可塑性ポリエステル樹脂、ポリカーボネート（PC）系樹脂、全芳香族ポリエステル樹脂、ポリフェニレンスルフィド（PPS）、塩化ビニル系樹脂（PVC）、ポリサルホン樹脂、ポリエーテルエーテルケトン

樹脂、（変性）ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリオキシメチレン（POM）、ポリメタクリル酸メチル（アクリル）（PMMA）、フッ素樹脂、ポリケトン（PK）、ノルボルネン、ポリアミドイミド（PAI）、ポリフタルアミド（PPA）などが挙げられ、これらの１種を単独で又は２種以上を混合して用いることができる。

## 【 0 0 2 4 】

この（B）成分の結合材の添加量は、（A）成分の導電性炭素粉末１００質量部に対して１０～５０質量部であり、好ましくは１０～４０質量部、より好ましくは１５～３０質量部である。（B）成分の結合材の添加量が少なすぎると成形材料（原料混合物）の流動性が低くなり、射出成形をすることが困難となり、一方、多すぎると導電性炭素粉末含有量の増加を計ることができず、導電性が低下して本発明の目的を達成することができない。

## 【 0 0 2 5 】

また、本発明の燃料電池セパレータ用組成物には、上記（A）、（B）成分以外にも、強度、離型性、耐加水分解性、導電性等の向上を目的として繊維基材、離型剤、金属粉末、耐加水分解剤などを必要に応じて添加することができる。

## 【 0 0 2 6 】

上記繊維基材としては、例えば鉄、銅、真鍮、青銅、アルミニウム等の金属繊維、セラミック繊維、チタン酸カリウム繊維、ガラス繊維、炭素繊維、ロックウール、ウォラストナイト、セピオライト、アタパルジャイト、人工鉱物質繊維等の無機質繊維、アラミド繊維、ポリイミド繊維、ポリアミド繊維、フェノール繊維、セルロース、アクリル繊維等の有機質繊維などが挙げられ、これらの１種を単独で又は２種以上を組み合わせ用いることができる。この場合、繊維基材の配合量は（A）成分の導電性炭素粉末１００質量部に対して０～１０質量部である。

## 【 0 0 2 7 】

離型剤としては、特に制限されず、シリコーン系離型剤、フッ素系離型剤、脂肪酸金属系離型剤、アマイド系離型剤、ワックス系離型剤などが挙げられ、特にカルナバワックス、ステアリン酸、モンタン酸等の内部離型剤が用いられる。こ

の場合、離型剤の配合量は（A）成分の導電性炭素粉末 1 0 0 質量部に対して 0 ～ 3 質量部である。

## 【 0 0 2 8 】

金属粉末としては、ステンレス、金、銀、銅、白金、チタン、アルミニウム、ニッケル等を用いることができる。この場合、金属粉末の平均粒径は通常 5 ～ 3 0  $\mu\text{m}$  である。

## 【 0 0 2 9 】

次に、本発明の片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータの製造方法は、（A）導電性炭素粉末 1 0 0 質量部に対して（B）結合材を 1 0 ～ 5 0 質量部添加混合した混合物を用いて射出成形するものであり、この場合特に、上記導電性炭素粉末として平均粒径 1 0 0 ～ 5 0 0  $\mu\text{m}$  であり、かつ嵩密度が 0. 6 g / m l 以上の球状乃至は塊状グラファイトを用いることが好ましい。

## 【 0 0 3 0 】

本発明の製造方法において、上記成形材料（原料混合物）は、予め単軸又は二軸或いはこれらに特殊な機構を組み合わせた混練押出し機で混練し、ペレット化する方法、又は汎用ミキサーを用いて混合し、乾燥する方法などを採用することができる。この際、導電性炭素粉末の粒径をできるだけ崩さないようにするため、特にミキサーによる混合が好ましい。

## 【 0 0 3 1 】

得られる混合物又はペレットを射出成形機に投入して射出成形を行う。具体的な射出成形の条件は、射出成形機、結合材の種類、配合量等により異なり一概には規定できないが、下記の通りであることが好ましい。

シリンダ温度（シリンダ前筒部）： 5 0 ～ 1 0 0  $^{\circ}\text{C}$

射出圧力       ： 8 ～ 2 0 M P a

射出時間       ： 5 ～ 1 5 秒

金型温度       ： 1 4 0 ～ 2 0 0  $^{\circ}\text{C}$

硬化時間       ： 1 5 ～ 2 0 0 秒

## 【 0 0 3 2 】

なお、本発明の燃料電池セパレータの製造方法は、射出成形だけでなく、圧縮

成形、射出-圧縮成形、トランスファー成形、押出成形、静水圧成形、ベルトプレス、ロール成形等の従来公知の成形方法から選ばれる1種又は2種以上の成形方法を組み合わせることにより行うことができる。

## 【0033】

本発明の製造方法によれば、高密度の大きい導電性炭素粉末を用いているので射出成形機のスクリュウへの安定投入可能となり、高充填でき、図2(A)、(B)に示したような片面又は両面にガス供給溝を有する特異な形状を有する燃料電池セパレータを射出成形することが可能となり、生産効率が飛躍的に向上し、大量生産できるものである。

## 【0034】

このようにして得られる燃料電池セパレータは、JIS H0602のシリコン単結晶及びシリコンウェーハの4探針法による抵抗率測定方法に準拠して測定した固有抵抗が $20\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ 以下、好ましくは $15\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ 以下、より好ましくは $2\sim15\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ である。

## 【0035】

また、本発明の燃料電池セパレータは、JIS K6911の「熱硬化性プラスチック一般試験方法」に基づき、燃料電池セパレータ用組成物で $100\text{ mm}\times10\text{ mm}\times4\text{ mm}$ の試験片を作成した場合の曲げ強度が好ましくは $20\sim80\text{ MPa}$ 、より好ましくは $25\sim60\text{ MPa}$ である。曲げ弾性率が好ましくは $1\sim15\text{ GPa}$ 、より好ましくは $2\sim10\text{ GPa}$ である。歪みは好ましくは $2\sim15\text{ mm}$ 、より好ましくは $3\sim12\text{ mm}$ である。

## 【0036】

更に、本発明の燃料電池セパレータは、JIS K 7126の「プラスチックフィルムのガス透過度評価方法」のB法(等圧法)に準じて、燃料電池セパレータ用組成物から $2\text{ mm}$ 厚 $\phi 100$ の試験片を作製し、 $23^\circ\text{C}$ での $\text{N}_2$ ガス透過度を測定した結果、 $20\text{ ml}/\text{m}^2\cdot24\text{ hr}\cdot\text{atm}$ 以下であり、好ましくは $2\sim20\text{ ml}/\text{m}^2\cdot24\text{ hr}\cdot\text{atm}$ 、より好ましくは $5\sim15\text{ ml}/\text{m}^2\cdot24\text{ hr}\cdot\text{atm}$ である。

## 【0037】



次に、本発明の固体高分子型燃料電池は、固体高分子電解質膜を挟む一対の電極と、該電極を挟んでガス供給排出用流路を形成する一対のセパレータとから構成される単位セルを多数並設した構造を備えてなり、この燃料電池中のセパレータの一部又は全部として上記本発明の燃料電池セパレータを用いたものである。

## 【 0 0 3 8 】

この場合、固体高分子型燃料電池は、図 1 に示したように、固体高分子電解質膜 2 よりなる電解質層の二つの面にそれぞれ燃料電極 3 と酸化剤電極 3 とを密着して配してなる燃料電池セルと、燃料電池セルの燃料電極側の側面に配された複数の燃料ガス用流路 4 と、マニホールドを有する一対の本発明の燃料電池セパレータ 1, 1 と、燃料電池セルの酸化剤電極側の側面に配された複数の酸化剤ガス用流路及びマニホールドを有する本発明のセパレータを、それぞれ、燃料電池側と酸化剤電極側に密着させてなる単電池を組み立てる。

## 【 0 0 3 9 】

そして、この単電池を複数個直列に積層し、その両端に電気絶縁用の絶縁板を介在させて締付板を配設して加圧保持し、一方の燃料電極に燃料ガスを、他方の酸化剤電極に酸化剤ガスを供給して直流電流を得るようにして発電運転が行われる。

## 【 0 0 4 0 】

本発明の燃料電池は、その燃料電池の全セパレータの一部又は全部として上記本発明の高弾性及び優れたガス不透過性の燃料電池セパレータを用いるものである。具体的には、燃料電池中の全セパレータの 5 0 % 以上、好ましくは 5 0 ~ 1 0 0 %、より好ましくは 7 0 ~ 1 0 0 %、更に好ましくは 8 0 ~ 1 0 0 % が本発明の燃料電池セパレータであることが好ましい。燃料電池中の全セパレータに占める本発明の燃料電池セパレータの割合が少なすぎると、燃料電池に組み立てる際のボルトとナットによる締め付けでセパレータにヒビや割れが生じ、ガスシール性及び耐衝撃性が低下し、本発明の目的及び作用効果を達成できなくなる場合がある。なお、本発明燃料電池セパレータ以外のセパレータとしては燃料電池に普通に用いられているセパレータを用いることができる。

## 【 0 0 4 1 】

ここで、上記固体高分子電解質膜としては、固体高分子型燃料電池に普通に用いられているものを使用することができる。例えばフッ素系樹脂により形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜であるポリトリフルオロスチレンスルホン酸、パーフルオロカーボンスルホン酸（商品名：N a f i o n）などを用いることができる。この電解質膜の表面には、触媒としての白金又は白金と他の金属からなる合金を担持したカーボン粉を調製し、この触媒を担持したカーボン粉をパーフルオロカーボンスルホン酸を含む低級脂肪酸族アルコールと水の混合溶液（N a f i o n 1 1 7 溶液）等の有機溶剤に分散させたペーストを塗布している。

#### 【 0 0 4 2 】

上記固体高分子電解質膜を挟む一对の電極としては、カーボンペーパー、カーボンフェルト、炭素繊維からなる糸で織成したカーボンクロスなどにより形成することができる。

#### 【 0 0 4 3 】

これら電解質膜及び電極は、一对の電極の間に電解質膜を介在させ、120～130℃で熱圧着することにより一体化する。なお、接着剤を用いて電解質膜と一对の電極とを接合して一体化することもできる。

#### 【 0 0 4 4 】

このようにして一体化された電解質膜及び電極を一对のセパレータの間に燃料ガスを供給排出可能な流路を形成するように取り付けて、単位セルが得られる。この場合、セパレータの電極と接する部分（リブ）に接着剤を塗布して取り付ける方法などを採用することができる。

#### 【 0 0 4 5 】

本発明の固体高分子型燃料電池は、この燃料電池中の全セパレータの一部（好ましくは50%以上）又は全部として高弾性及び優れたガス不透過性を有する本発明の燃料電池セパレータを用いることにより、組み立て時の締め付けによりセパレータに割れやヒビが生じることがなく、高いガスシール性と優れた耐衝撃性を有するので、特に自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として好適なものである。

【 0 0 4 6 】

なお、本発明の固体高分子型燃料電池は、自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源以外にも、小規模地域発電、家庭用発電、キャンプ場等での簡易電源、人工衛星、宇宙開発用電源等の各種用途に幅広く用いることができるものである。

【 0 0 4 7 】

【発明の効果】

本発明によれば、高い弾性、高導電性、優れたガス不透過性を有する高品質な燃料電池セパレータを効率よく、大量生産できると共に、この燃料電池セパレータを一部又は全部に用いることにより、組み立て時のヒビや割れの発生がなく、高いガスシール性と優れた耐衝撃性を有する高性能な固体高分子型燃料電池が得られる。

【 0 0 4 8 】

【実施例】

以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。なお、表 1 中の各成分の配合量はいずれも質量部である。

【 0 0 4 9 】

【実施例 1, 2、比較例 1～4】

表 1 の組成を汎用ミキサーで混合し、乾燥し混合材料を得た。得られた混合材料を射出成形機（松田製作所製 1 0 0 F - 4 5 K）を用いて下記条件で射出成形を行い、長さ 1 2 0 m m、幅 1 2 0 m m、厚み 2. 3 m m の図 2（A）に示したような両面にガス供給溝 4 を有する燃料電池セパレータを作成した。なお、比較例 1, 4 は材料が射出成形機のスクリー内で空回りしてしまい、シリンダ内まで入らないか、或いは材料がシリンダ内に入ったとしてもスクリーの中央部でスリップ現象が生じて先端部まで運ぶことができず、成形不能であった。

＜成形条件＞

シリンダ温度（シリンダ前筒部）：6 5 ℃

射出圧力       ：1 0 ～1 5 M P a

射出時間 : 5 ～ 1 5 秒  
 金型温度 : 1 6 0 ～ 1 6 5 ℃  
 硬化時間 : 9 0 ～ 1 2 0 秒

【 0 0 5 0 】

得られたセパレータについて成形性、ガス不透過性及び垂直断面におけるグラファイトの占有面積率を求めた。結果を表 1 に示す。また、参考写真 1 に実施例 2 のセパレータの垂直方向断面写真 (× 2 0 0) を、参考写真 2 に比較例 2 のセパレータの垂直方向断面写真 (× 2 0 0) をそれぞれ示す。

#### 成形性

○ : 良好  
 △ : やや劣る  
 × : 不良

#### ガス不透過性

J I S K 7 1 2 6 の「プラスチックフィルムのガス透過度評価方法」の B 法 (等圧法) に準じて、セパレータから切り出した 2 m m 厚  $\phi$  1 0 0 の試験片の 2 3 ℃ における  $N_2$  ガス透過度 ( $m l / m^2 \cdot 2 4 h r \cdot a t m$ ) を測定し、下記基準で評価した。

○ : 2 0 未満  
 △ : 2 0 ～ 1 0<sup>3</sup>  
 × : 1 0<sup>3</sup> 超

#### グラファイトの占有面積率

セパレータの任意の垂直方向 (厚さ方向) の断面をデジタル C C D カメラを取り付けた顕微鏡 (カールツァイス株式会社製アキシオスコープ 2) で 2 0 0 倍で観察し、上記同様の方法により、垂直方向断面における長軸方向の最大長さが 5 0  $\mu m$  以上であり、かつ短軸方向の最大長さが 3 0  $\mu m$  以上であるグラファイトの占有面積率を求めた。なお、比較例 1, 4 は成形不能であるため、占有面積率を求めることができなかった。また、比較例 2, 3 は成形することはできたが、均一な性状のセパレータは得られず、求めたグラファイトの占有面積率も不正確なものであった。

## 【 0 0 5 1 】

次に、表 1 の組成物を上記同様の条件で射出成形して 1 0 0 m m × 1 0 m m × 4 m m の試験片を作成した。得られた試験片について下記方法により、曲げ強度、曲げ弾性率、歪み及び固有抵抗を測定した。結果を表 1 に示す。

曲げ強度、曲げ弾性率、歪み

J I S K 6 9 1 1 の熱硬化性プラスチックの一般試験法に準じて測定した。

固有抵抗

J I S H 0 6 0 2 のシリコン単結晶及びシリコンウェーハの 4 探針法による抵抗率測定方法に準拠して固有抵抗を測定した。

## 【 0 0 5 2 】

【表 1】

	実 施 例		比 較 例			
	1	2	1	2	3	4
グラファイトA	100	—	—	—	—	—
グラファイトB	—	100	—	—	—	—
グラファイトC	—	—	100	—	—	—
グラファイトD	—	—	—	100	—	—
グラファイトE	—	—	—	—	100	—
グラファイトF	—	—	—	—	—	100
フェノール樹脂 * 1	17.6	17.6	17.6	17.6	17.6	17.6
離型剤 * 2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
グラファイトの占有面積率(%)	71	65	—	62	—	—
ガス不透過性	○	○	—	×	×	—
成形性	○	○	×	△	△	×
固有抵抗( $m\Omega \cdot cm$ )	12	13	—	18	20	—
曲げ強度(MPa)	42	46	—	39	50	—
曲げ弾性率(GPa)	42	40	—	43	49	—
歪み(mm)	0.6	0.6	—	0.7	0.6	—

グラファイト A : 塊状、平均粒径 2 5 0 ~ 4 2 5  $\mu$  m、嵩密度 0. 9 g / m l

グラファイト B : 塊状、平均粒径 1 8 0 ~ 2 5 0  $\mu$  m、嵩密度 0. 8 g / m l

グラファイト C : 塊状、平均粒径 6 0  $\mu$  m、嵩密度 0. 5 8 g / m l

グラファイト D : 鱗片状、平均粒径 4 2 5  $\mu$  m、嵩密度 0. 5 g / m l

グラファイト E : 鱗片状、平均粒径 3 0  $\mu$  m、嵩密度 0. 3 g / m l

グラファイト F : 鱗片状、平均粒径 1 0  $\mu$  m、嵩密度 0. 2 3 g / m l

なお、グラファイトの嵩密度は J I S K 6 8 9 1 - 1 9 9 5 に準拠して測定した。

\* 1 : レゾール型フェノール樹脂 商品名 P L - 4 8 0 4 ( 群栄化学工業株式会社製)

\* 2 : ステアリン酸亜鉛

【 0 0 5 3 】

#### 〔実施例 3〕 固体高分子型燃料電池 ( 1 )

固体高分子電解質膜 ( 商品名 : N a f i o n ) を挟む一対の電極としてカーボンペーパー ( 株式会社ケミックス製 ) を用いた。これらを常法により接合して一体化電極を作成した。この一体化電極を実施例 1 で作成した一対の燃料電池セパレータで挟んで燃料ガス供給排出用流路を有する単位セルを得た。この単位セルを 5 0 個並設し、ボルトとナットで締め付けて燃料電池を組み立てた。この際ボルトとナットで締め付けによりセパレータにワレやヒビが生じることはなかった。

【 0 0 5 4 】

得られた燃料電池は、充放電可能であり、燃料電池として有効に機能することが認められた。

また、組み立てた燃料電池について車載を想定した振動及び衝撃を 1 0 0 0 回加えたところ、セパレータに破損は見られなかった。

【 0 0 5 5 】

#### 〔実施例 4〕 固体高分子型燃料電池 ( 2 )

固体高分子電解質膜 ( 商品名 : N a f i o n ) を挟む一対の電極としてカーボンペーパー ( 株式会社ケミックス製 ) を用いた。これらを常法により接合して一

体化電極を作成した。この一体化電極を実施例 2 で作成した一対の燃料電池セパレータで挟んで燃料ガス供給排出用流路を有する単位セルを得た。この単位セルを 1 0 0 個並設し、ボルトとナットで締め付けて燃料電池を組み立てた。この際ボルトとナットで締め付けによりセパレータにワレやヒビが生じることはなかった。

【 0 0 5 6 】

得られた燃料電池は、充放電可能であり、燃料電池として有効に機能することが認められた。

また、組み立てた燃料電池について車載を想定した振動及び衝撃を 1 0 0 0 回加えたところ、セパレータに破損は見られなかった。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

燃料電池の一例を示した斜視図である。

【図 2】

本発明の一実施例にかかる燃料電池セパレータの斜視図である。

【図 3】

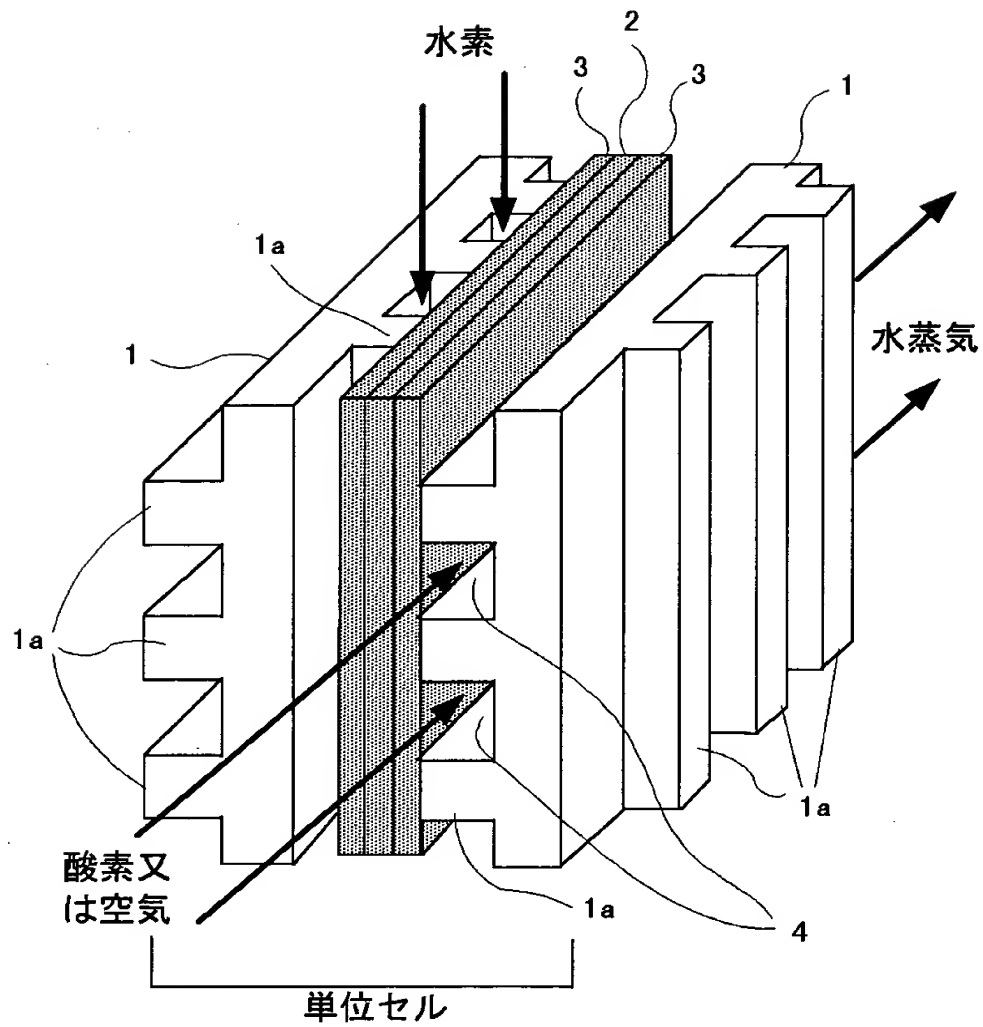
セパレータの垂直断面の概略図である。

【符号の説明】

- 1 セパレータ
- 1 a リブ
- 2 固体高分子電解質膜
- 3 ガス拡散電極
- 4 ガス供給溝（流路）

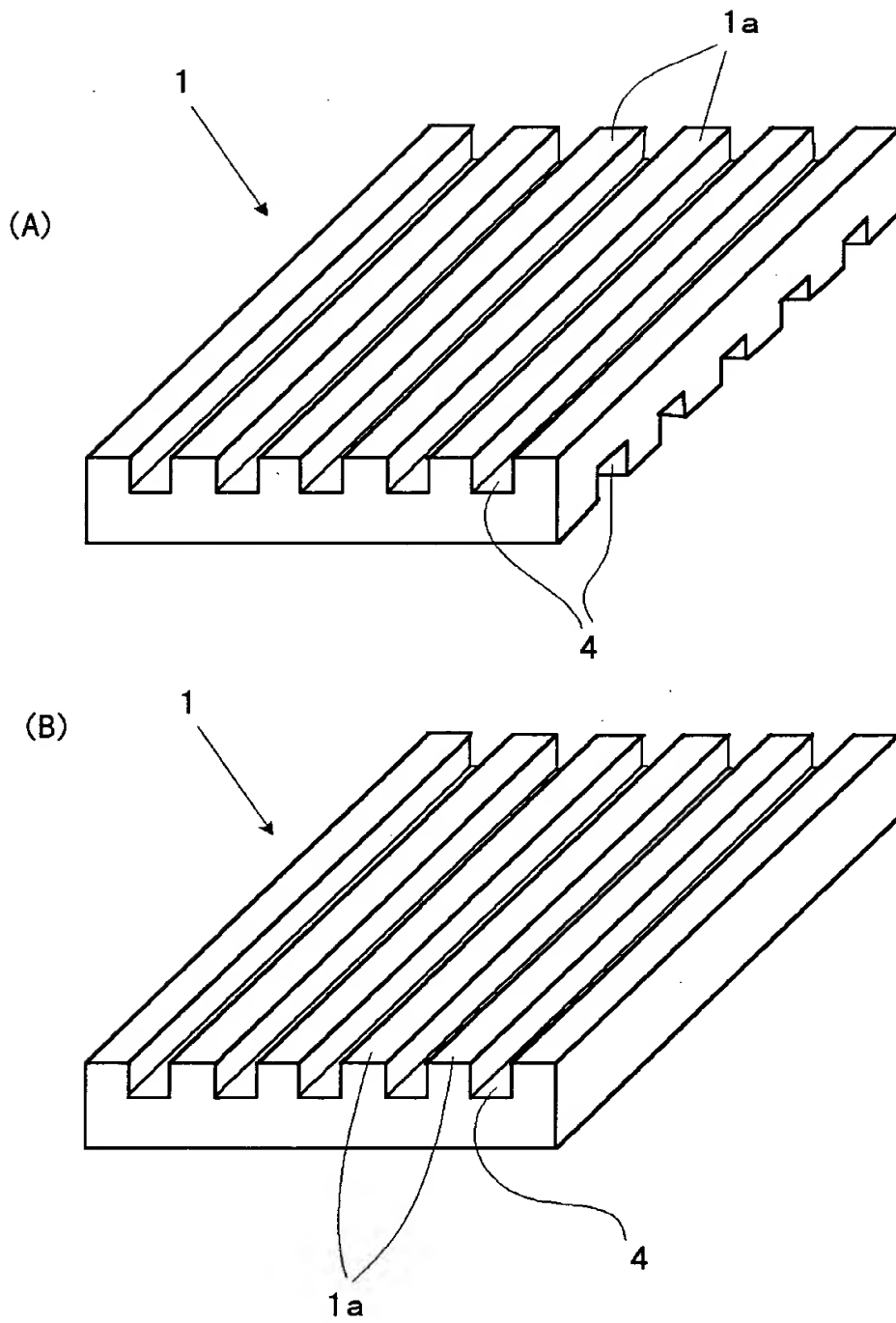
【書類名】 図面

【図 1】

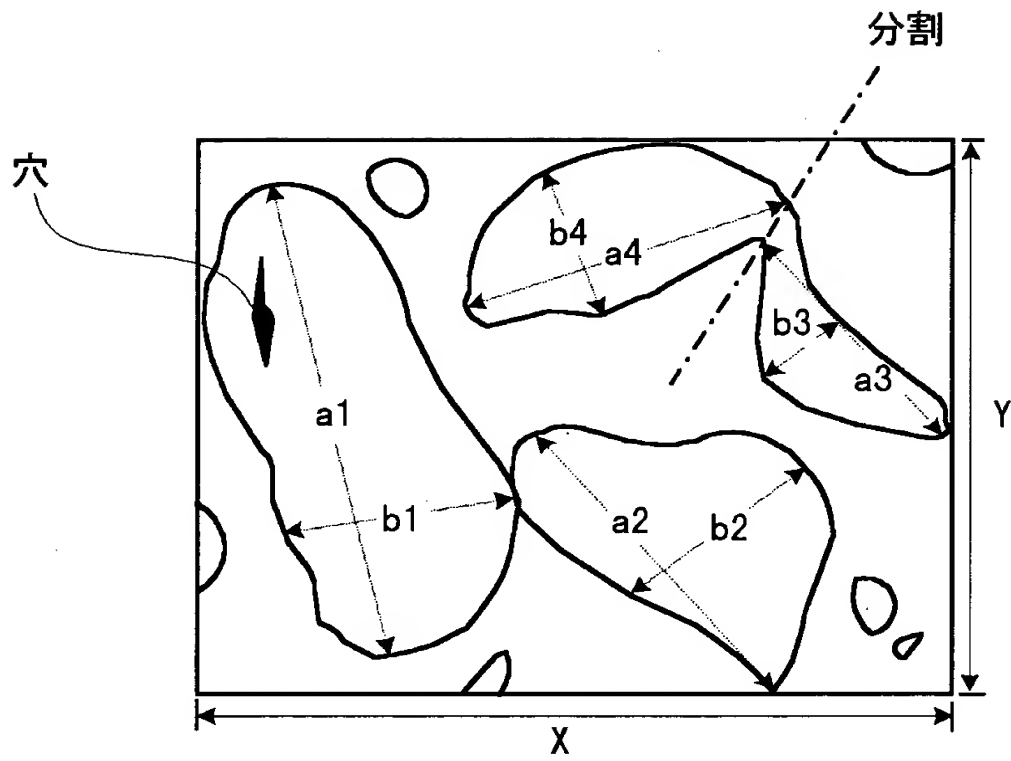




【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【解決手段】 導電性炭素粉末と結合材とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータの垂直方向断面における長軸方向の最大長さが  $70\ \mu\text{m}$  以上であり、かつ短軸方向の最大長さが  $30\ \mu\text{m}$  以上である導電性炭素粉末の総占有面積が垂直方向断面の面積に対して  $50\%$  以上であることを特徴とする燃料電池セパレータ及びその製造方法並びに固体高分子型燃料電池。

【効果】 本発明によれば、高い弾性、高導電性、優れたガス不透過性を有する高品質な燃料電池セパレータを効率よく、大量生産できると共に、この燃料電池セパレータを一部又は全部に用いることにより、組み立て時のヒビや割れの発生がなく、高いガスシール性と優れた耐衝撃性を有する高性能な固体高分子型燃料電池が得られる。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000004374]

1. 変更年月日 1993年 3月30日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都中央区日本橋人形町2丁目31番11号

氏 名 日清紡績株式会社